

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 06-191955

(43)Date of publication of application : 12.07.1994

---

(51)Int.Cl.

G04B 35/58

---

(21)Application number : 04-342910

(71)Applicant : MATSUSHITA ELECTRIC WORKS  
LTD

(22)Date of filing : 22.12.1992

(72)Inventor : KAJITA SUSUMU  
HASHIMOTO NOBORU  
YODA HIROYOSHI  
TANAKA YASUSHI

---

(54) PRODUCTION OF ALUMINUM NITRIDE SINTERED COMPACT

(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain an AlN sintered compact excellent in thermal conductivity and mechanical strength at low cost in a practical way.

CONSTITUTION: AlN powder  $\geq 12.0 \text{ m}^2/\text{g}$  in specific surface area is added with an oxygen-contg. and nonfluorine base rare earth metal compound as sintering auxiliary followed by molding, and the resultant form is then sintered in a nonoxidative atmosphere at  $\leq 1650^\circ\text{C}$ , thus obtaining the objective AlN sintered compact.

---

### LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's  
decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's  
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2000 Japan Patent Office

(19)日本国特許庁(JP)

(12)公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開平6-191955

(43)公開日 平成6年(1994)7月12日

(51)Int.Cl. <sup>5</sup>	識別記号	庁内整理番号	FI	技術表示箇所
C 0 4 B 35/58	1 0 4 U			

審査請求 未請求 請求項の数2(全11頁)

(21)出願番号 特願平4-342910

(22)出願日 平成4年(1992)12月22日

(71)出願人 000005832

松下電工株式会社

大阪府門真市大字門真1048番地

(72)発明者 梶田 進

大阪府門真市大字門真1048番地松下電工株式会社内

(72)発明者 橋本 登

大阪府門真市大字門真1048番地松下電工株式会社内

(72)発明者 余田 浩好

大阪府門真市大字門真1048番地松下電工株式会社内

(74)代理人 弁理士 松本 武彦

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 窒化アルミニウム焼結体の製造方法

(57)【要約】

【目的】 熱伝導率および機械的強度に優れた窒化アルミニウム焼結体を安価に得られる実用的な方法を提供する。

【構成】 この発明は、比表面積が $12.0\text{ m}^2/\text{g}$ 以上の窒化アルミニウム粉末に焼結助剤として非フッ素系の酸素を含む稀土類化合物を添加し成型してある成形体を、非酸化性雰囲気中で $1650^\circ\text{C}$ 以下の温度で焼成することを特徴とする。

ドが粒界破壊となる。一般に機械強度は稀土類化合物単独の場合に比べて低下してしまう。稀土類化合物が $Y_2O_3$ 単独の場合を例にとると、 $1760^\circ C$ で $Al_2O_3$ との間で液相を形成し、この液相が窒化アルミニウムのグレインを濡らしはするものであるが、粒界層を形成せず粒界の三重点に集まり易く粒界層は非常に薄くなり、この結果、破壊モードは粒界破壊ではなく粒内破壊となり易い。粒内破壊の方が粒界破壊に比べて、一般的に機械的強度は高くなる。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】この発明は、上記事情に鑑み、熱伝導率および機械的強度に優れた窒化アルミニウム焼結体を安価に得ることのできる実用的な方法を提供することを課題とする。

【0006】

【課題を解決するための手段】前記課題を解決するた

め、この発明にかかると窒化アルミニウム焼結体の製造方法は、窒化アルミニウム粉末に焼結助剤を添加し成型してなる成形体を、非酸化性雰囲気中で焼成することにより焼結させるにあり、窒化アルミニウム粉末に焼結助剤を添加し成型してなる成形体を、非酸化性雰囲気中で焼成することにより焼結させる窒化アルミニウム焼結体の製造方法において、前記窒化アルミニウム粉末の比表面積が $12.0\text{ m}^2/\text{g}$ 以上であって、前記焼結助剤が、非酸化性雰囲気での焼成を $1650^\circ C$ 以下の温度で行うようにしている。

【0007】この発明において、焼成の前または焼成中に還元処理を行うようにする形態は、以下で詳しく述べるように、得られる窒化アルミニウム焼結体（以下、「 $AlN$ 焼結体」と言う）の熱伝導率の高める上で有効であり、有用な形態とすることが出来る。この発明において、比表面積が $12.0\text{ m}^2/\text{g}$ 以上の微小粒径の窒化アルミニウム粉末（以下、「 $AlN$ 粉末」と言う）を用いる理由は、非酸化性雰囲気を含む稀土類化合物（稀土類元素の含酸素化合物）、すなわち稀土類酸化物、焼成で稀土類酸化物となる非酸化系化合物からなる稀土類化合物群の範囲にある化合物だけの使用のもとに $1650^\circ C$ 以下の低温焼成で焼結させられるようになるからである。

【0008】前述したように、稀土類元素の酸化物又は酸化物とアルカリ土類元素の酸化物を併用すると、比表面積が $12.0\text{ m}^2/\text{g}$ 未満の $AlN$ 粉末でも焼結可能なのであるが、粒成長などによる機械的強度の低下、 $AlN$ 焼結体の焼けムラ、焼成炉やセツク等の劣化等の問題を生じる。この発明は、併用形態をとらずとも、低温焼成で焼結させられるようになる上記併用の不都合が解消できるようにする。

【0009】代表的な稀土類元素の含酸素化合物である $Y_2O_3$ を例にとると、 $Y_2O_3$ と $AlN$ 粉末表面の $Al$

【産業上の利用分野】この発明は、窒化アルミニウム焼結体の製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】 $IC$ 等に代表されるような半導体素子の

高集積化や大電力化が進み、これに伴って、放熱性の良い電気絶縁材料が要求されるようになった。その中でも、特に、窒化アルミニウム焼結体からなる絶縁基板が、熱伝導性、熱膨張性、電気絶縁性等の点で優れているといふことから、注目され実用化も進んでいる。

【0003】しかしながら、窒化アルミニウム焼結体

は、原料の窒化アルミニウム粉末が高価であるとともに難焼結性で $1750^\circ C$ 以上の高温焼成を必要とするため、非常に高価なものとなっている。このため、焼成温度を下げてコスト低減を図る窒化アルミニウム焼結体の製造方法が提案されている。窒化アルミニウム粉末に、焼結助剤として、稀土類元素の酸化物や酸化物とアルカリ土類元素の酸化物又は酸化物を併用することが提案されている（特開昭61-209959号公報、USP4,746,637号明細書）。ここでは、 $1550\sim 1700^\circ C$ という低温焼成で緻密で高熱伝導率の窒化アルミニウム焼結体

が得られるとされている。しかしながら、上記の方法の場合、以下のような問題がある。

【0004】焼結助剤に酸化物を併用すると、焼成時に焼結助剤の分解で生じたフッ素元素が簡単にHFなどの腐食性・毒性のガスになり、作業者の健康への悪影響や焼成炉等の損傷などの問題が起こるために実用的とは言えない。焼結助剤としての稀土類化合物とアルカリ土類化合物の併用は、稀土類化合物の単独使用の場合に比べて、液相形成温度の低下が認められ、そのため、低温での焼結が可能となるため高熱伝導率化には有利でも機械的強度の面では不利となる。また、アルカリ土類の場合、焼成中に坩堝が起こり易く、焼結体中で不均一な分布を生じ易く、また、窒化アルミニウム焼結体の焼けムラ、焼成炉や坩堝であるセツクへの付着反応による劣化などといった問題を生じる。加えて、上記の液相は厚い粒界層を形成してグレインを取り巻くため、破壊モード

【0013】このように、この発明で得るA1N焼結体は、グレイソサイアスがいさ、原料のA1N粉末中の不純物酸素の多いことと熱伝導率の点では不利である。しかしながら、この発明において、焼成の前または焼成中に還元処理がなされるならば、熱伝導率を向上させることが出来る。この還元処理でA1N粉末中の不純物酸素が減り、その分、熱伝導率が高まる。ただ、この還元処理で焼結体中のグレイソサイアスに変化は殆ど生じないため、グレイソサイアスによる熱伝導率の減少の解消は全く望めないようにも見えるが、酸素量の低減により焼結時に窒化アルミニウムのグレイソ内にA1N粉末の表面の酸素が一部取り込まれ、これによりグレイソ自体の熱伝導率が改善されるので、グレイソサイアスによる熱伝導率の減少の解消も、一定程度は望めることになる。このように、還元処理を行う場合は、グレイソサイアスはいさながらも、高純度化により高熱伝導率化が図れるのである。【0014】上述の要点を簡単に纏めると以下のようなことになる。この発明では、種々の問題の原因となるアルカリ土類化合物やフッ素系の焼結助剤を使わず、経済的な焼成コストを可能とする1650℃以下の低温焼成で焼結させるために、原料として12m<sup>2</sup>/g以上の微粒子のA1N粉末と稀土類元素の含酸素化合物を用いる。その結果、焼結体中のグレイソサイアスはアルカリ土類化合物(稀土類元素の含酸素化合物)における稀土類元素として、Y, La, Dy, Er, Ce, Sm, Pm, Nd, Eu, Gd, Tb, Pr, Tm, Lu, Ho, Ybなどの酸化物、水酸化物、しょう酸化物などの形態のものか挙げられる。焼結助剤の使用にあたっては、稀土類酸化物を複数種併用したり、焼成で稀土類酸化物となる化合物とを併用したりする。焼結助剤が0.1~10重量%を占めるようになるよう【0016】焼成は、1400℃から1650℃までの温度範囲で1~6時間程度の時間行うが、この焼成条件に限らない。還元処理は、焼成の前または焼結のための焼成中のいずれでもよいが、焼結の進んでいない前が酸素が除去され易い。例えば、1650℃で焼結を行う場合、1200℃までを還元雰囲気とし、その後は中性雰囲気中で焼結させるようにしてよいし、全焼成中を還元雰囲気とし焼結処理と還元処理を同時に平行して行

12O<sub>2</sub>とて共晶融液を形成するのが、1760℃以上であり、液相焼結を行うには、これ以上の温度で焼成することが必要となる。発明者らの検討によると、比表面積が3.0m<sup>2</sup>/g程度の粗いA1N粉末を用い、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>単独で焼結せよとすると、上述の液相焼結は不可であり、1760℃以上の高温焼成が必須となる。そこで、発明者らは、検討を続け、比表面積が12.0m<sup>2</sup>/g以上の細かなA1N粉末なら液相焼結でなく固相焼結が可能で焼成温度の低減が図れるようであることを見いだしたのである。比表面積が12.0m<sup>2</sup>/g未満のA1N粉末だと1700℃を越す焼成温度が必要なのであるが、比表面積が12.0m<sup>2</sup>/g以上のA1N粉末だと非フッ素系稀土類化合物の焼結助剤だけで1650℃以下の焼成温度で焼結が可能であることを見いだしたのである。【0010】1650℃以下の焼成で焼結が可能となると、焼成コストの低減に反映されるメリットがある。具体的には、焼成容器として使われている高価なBN容器の寿命が大幅に伸びることが挙げられるし、さらに、高価なBN容器の代わりに安価なアルミナ系容器の使用が可能となることも挙げられる。安価なアルミナ系容器は1650℃を超え焼成では高温クリープによる変形が著しくなるため従来なら使えない。さらに、消費電力の節約など焼成炉のランニングコストの面でもコストダウンが図れる。【0011】続いて、この発明で得るA1N焼結体の熱伝導率や機械的強度に関して述べる。上でみたように、この発明の場合、比表面積が12.0m<sup>2</sup>/g以上の微細なA1N粉末を用い、非フッ素系稀土類化合物の焼結助剤だけで1650℃以下の焼成温度で焼結を行うのであると考えると、A1N焼結体のグレイソサイアスは1650℃以下でも液相を形成するアルカリ土類化合物を焼結助剤として用いた場合に比べ小さく、この結果、機械的強度が大きくなる。ただ、A1N焼結体のグレイソサイアスが小さくなることで熱伝導率は普通は小さくなる傾向がある。なぜなら、A1N焼結体中の熱伝導機構はフッ素伝導であり、このフッ素伝導は粒界部分で散乱を起こし易く、グレイソサイアスの小さなA1N焼結体の場合は粒界部分が多く、この結果、このフッ素散乱も大きく、熱伝導が妨げられるからである。【0012】また、熱伝導率低下の原因となるA1N粉末中の不純物酸素は、一般にA1N粉末の比表面積が大きくなる(粒径が細くなる)ほど増加する。というのは、不純物酸素はA1N粉末の表面に存在するからである。したがって、比表面積が12.0m<sup>2</sup>/g以上の微細なA1N粉末を用いるこの発明では、不純物酸素量が、必然的に粒径の大きなA1N粉末を用いる場合に比べて多くなる。



焼結助剤の 種類と量 (重量%)	焼成温度 と時間 T, H r	焼成時雰囲気	焼成用 の容器 の材質
実施例 1	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 3 重量% 1 6 5 0	~1200°C H <sub>2</sub> + N <sub>2</sub> ※ 1200°C ~ N <sub>2</sub>	BN
実施例 2	Y(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> 3 重量% 1 6 0 0	~1200°C H <sub>2</sub> + N <sub>2</sub> ※ 1200°C ~ N <sub>2</sub>	BN
実施例 3	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 3 重量% 1 6 0 0	H <sub>2</sub> + N <sub>2</sub> ※ Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	
実施例 4	La <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 3 重量% 1 6 0 0	H <sub>2</sub> + N <sub>2</sub> ※ Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	
実施例 5	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 3 重量% 1 6 0 0	N <sub>2</sub>	BN
比較例 1	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 3 重量% 1 6 5 0	N <sub>2</sub>	BN
比較例 2	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 3 重量% C a O 0.5 重量%	N <sub>2</sub>	BN
比較例 3	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 3 重量% C a O 0.5 重量%	N <sub>2</sub>	BN

	密度 (g/cm <sup>3</sup> )	熱伝導率 (W/mK)	曲げ強度 kgf/mm <sup>2</sup>	平均サイズ μm	AlN粉末 の非表面積
実施例1	3.30	150	44	0.9 μm	12 m <sup>2</sup> /g
実施例2	3.29	143	46	0.8 μm	12 m <sup>2</sup> /g
実施例3	3.30	135	48	0.7 μm	15 m <sup>2</sup> /g
実施例4	3.33	130	47	0.7 μm	15 m <sup>2</sup> /g
実施例5	3.30	120	50	0.7 μm	15 m <sup>2</sup> /g
比較例1	2.87	100	25	1.0 μm	10 m <sup>2</sup> /g
比較例2	3.23	115	28	1.4 μm	10 m <sup>2</sup> /g
比較例3	3.10	108	23	1.5 μm	3 m <sup>2</sup> /g

【0030】表2にみるように、実施例のA1N焼結体

は、アルカリ土類系や珪素系の焼結助剤を使わずと

も、十分に緻密化しており、又、高い熱伝導率と曲げ強

度を兼ね備えているが、比較例のA1N焼結体は、これ

らの特性を兼ね備えてはいなかった。

【0031】

【発明の効果】この発明にかかるA1N焼結体の製造方

法では、1650℃以下の低温焼成であるため、焼成治

具用容器の長寿命化および低価格材料容器の使用が可能と\*

\* なるとともに消費電力の節約などによるランニングコストの低減も可能となる上、アルカリ土類系や珪素系の焼結助剤を使わずにすむため、焼けムラ、反り、ゆがみや歪み等の歪みによる劣化が抑えられるだけでなく、スライソサイズが小さくなり、機械的強度に優れたA1N焼結体が安価に得られ、加えて還元処理が施される場合にはA1N焼結体の熱伝導率の向上も可能となり、したがって、この発明は実用的であって非常に有用である。

【手続補正書】

【提出日】平成5年2月24日

【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正内容】

【書類名】明細書

【発明の名称】窒化アルミニウム焼結体の製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項1】 窒化アルミニウム粉末に焼結剤を添加し

成形してなる成形体を、非酸化性雰囲気中で焼成すること

により焼結させる窒化アルミニウム焼結体の製造方法に

おいて、前記窒化アルミニウム粉末の比表面積が12.

0m<sup>2</sup>/g以上であって、前記焼結助剤が、珪素系

の酸素を含む珪土類化合物であり、前記非酸化性雰囲気

結体の製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】IC等に代表されるような半導体素子の

高集積化や大電力化が進み、これに伴って、放熱性の良

い電気絶縁材料が要求されるようになった。その中で

も、特に窒化アルミニウム焼結体からなる絶縁基板が、

熱伝導性、熱膨張性、電気絶縁性等の点で優れていると

いうことから、注目され実用化も進んでいる。



【0003】しかしながら、窒化アルミニウムの焼結体は、原料の窒化アルミニウム粉末が高価であるとともに難焼結性で1750℃以上の高温焼成を必要とするため、非常に高価なものとなっていた。このため、焼成温度を下げてコスト低減を図る窒化アルミニウム焼成体の製造方法が提案される。窒化アルミニウム粉末に、焼結助剤として、稀土類元素のフッ化物や酸化物とアルカリ土類元素のフッ化物は酸化物とを併用することが提案されている（特開昭61-209959号公報，USP 4, 746, 637号）。ここでは、1550～1700℃という定温焼成で緻密で高熱伝導率の窒化アルミニウム焼結体が得られるとされている。しかしながら、上記の方法の場合、以下のような問題がある。

【0004】焼結助剤にフッ化物を用いると、焼成時に焼結助剤の分解で生じたフッ素元素が簡単にHFなどの腐食性・毒のガスになり、作業者の健康への悪影響や焼成炉等の損傷などの問題が生じるために実用的とは言えない。焼結助剤としての稀土類化合物とアルカリ土類化合物の併用は、稀土類化合物の単独使用の場合に比べ、液相形成温度の低下が認められ、そのため、低温での焼結が可能となるのであるが、同時に液相形成による粒成長が顕著となるため高熱伝導率化には有利でも機械的強度の面では不利となる。また、アルカリ土類の場合、焼成中に拡散が起り易く、焼結体中で不均一な分布を生じ易く、また、窒化アルミニウム焼結体の焼けムラ、焼成炉や治具であるセッターへの付着反応による劣化などといった問題を生じる。加えて、上記の液相は厚い粒界層を形成してグレインを取り巻くため、破壊モードが粒界破壊となる。一般に機械強度は稀土類化合物単独の場合に比べて低下してしまう。稀土類化合物が $Y_2O_3$ 単独の場合を例にとると、1760℃で $Al_2O_3$ との間で液相を形成し、この液相が窒化アルミニウムのグレインを濡らしはするのであるが、アルカリ土類のように厚い粒界層を形成せずに粒界の三重点に集まり易くて粒界層は非常に薄くなり、この結果、破壊モードは粒界破壊ではなく粒内破壊となり易い。粒内破壊の方が粒界破壊に比べて、一般的に機械的強度は高くなる。

【0005】

【発明が解決しようとする手段】この発明は、上記事情に鑑み、熱伝導率および機械的強度に優れた窒化アルミニウム焼結体を安価に得ることのできる実用的な方法を提供することを課題とする。

【0006】

【課題を解決するための手段】前記課題を解決するため、この発明にかかる窒化アルミニウム焼結体の製造方法は、窒化アルミニウム粉末に焼結助剤を添加し成型してなる成形体を、非酸化性雰囲気中で焼成することにより焼結させるにあたり、前記窒化アルミニウム粉末の比表面積が $12.0\text{ m}^2/\text{g}$ 以上であって、前記焼結助剤が、非フッ素系の酸素を含む稀土類化合物であり、前記

非酸化性雰囲気での焼成を1650℃以下の温度で行うようにしている。

【0007】この発明において、焼成の前後または焼成中に還元処理を行うようにする形態は、以下詳しく述べるように、得られる窒化アルミニウム焼結体（以下、「AIN焼結体」と言う）の熱伝導率を高める上で有効であり、有用な形態ということが出来る。この発明において、比表面積が $12.0\text{ m}^2/\text{g}$ 以上の微小粒径の窒化アルミニウム粉末（以下、「AIN粉末」と言う）を用いる理由は、非フッ素系の酸素を含む稀土類化合物（稀土類元素の含酸素化合物）、すなわち稀土類化合物、焼成で稀土類化合物となる非フッ素系の化合物からなる稀土類化合物群の範囲にある化合物だけの使用のもとに1650℃以下の低温焼成で焼結させられるようになるからである。

【0008】前述したように、稀土類元素のフッ化合物又は酸化物とアルカリ土類元素のフッ化合物又は酸化物を併用すると、比表面積が $12.0\text{ m}^2/\text{g}$ 未満のAIN粉末でも焼結可能なのであるが、粒成長などによる機械的強度の低下、AIN焼結体の焼けムラ、焼成炉やセッターの劣化等の問題を生じる。この発明は、併用形態をとらずとも、低温焼成で焼結させられるようになる上記併用の不都合が解消できるようになる。

【0009】代表的な稀土類元素の含酸素化合物である $Y_2O_3$ を例にとると、 $Y_2O_3$ とAIN粉末表面の $Al_2O_3$ とで共晶融液を形成するのが、1760℃以上であり、液相焼結を行うには、これ以上の温度で焼成することが必要となる。発明者らの検討によると、比表面積が $3.0\text{ m}^2/\text{g}$ 程度の粗いAIN粉末を用い、 $Y_2O_3$ 単独で焼結させようとする、上述の液相焼結は不可欠であり、1760℃以上の高温焼成が必須となる。そこで、発明者らは、検討を続け、AIN粉末の粒径をさらに細かくしてゆくと液相焼結でなく固相焼結が可能で焼成温度の低減が図れるようであることを見いだしたのである。比表面積が $12.0\text{ m}^2/\text{g}$ 未満のAIN粉末だと1700℃を越す焼成温度が必要なのであるが、比表面積が $12.0\text{ m}^2/\text{g}$ 以上のAIN粉末だと非フッ素系稀土類化合物の焼結助剤だけで1650℃以下の焼成温度で焼結が可能であることを見いだしたのである。

【0010】1650℃以下の焼成で焼結が可能となると、焼成コストの低減に反映されるメリットがある。具体的には、焼成容器として使われている高価なBN容器の寿命が大幅に伸びることが挙げられるし、さらに、高価なBN容器の代わりに安価なアルミ系容器の使用が可能となることも挙げられる。安価なアルミ系容器は1650℃を超える焼成では高温クリープによる変形が著しくなるため従来なら使えない。さらに、消費電力の節約などで焼成炉のランニングコストの面でもコストダウンが図れる。

【0011】続いて、この発明で得るAIN焼結体の熱

伝導率や機械的強度に関して述べる。上で述べたように、この発明の場合、比表面積が $12.0\text{ m}^2/\text{g}$ 以上の微細なAlN粉末を用い、非フッ素系稀土類化合物の焼結助剤だけで $1650^\circ\text{C}$ 以下の焼成温度で焼結を行うので、その焼結メカニズムは液相焼結ではなく固相焼結であると考えられるのである。それ故、AlN焼結体のグレインサイズは $1650^\circ\text{C}$ 以下でも液相を形成するアルカリ土類化合物を焼結助剤として用いた場合に比べ小さく、この結果、機械的強度が大きくなる。ただ、AlN焼結体のグレインサイズが小さくなることで熱伝導率は普通は小さくなる傾向がある。なぜなら、AlN焼結体での熱伝導機構はフォノン伝導であり、このフォノン伝導は粒界部分で散乱を起こし易く、グレインサイズの小さなAlN焼結体の場合は粒界部分が多く、この結果、このフォノン散乱も大きく、熱伝導が妨げられるからである。

【0012】また、熱伝導率低下と原因となるAlN粉末中の不純物酸素は、一般にAlN粉末の比表面積が大きくなる（粒径が細くなる）ほど増加する。というのは、不純物酸素はAlN粉末の表層に存在し易いからである。したがって、比表面積が $12.0\text{ m}^2/\text{g}$ 以上の微細なAlN粉末を用いるこの発明では、不純物酸素量が、必然的に粒径の大きなAN粉末を用いる場合に比べて多くなる。

【0013】このように、この発明で得るAlN焼結体はグレインサイズが小さいこと、原料のAlN粉末中の不純物酸素の多いことで、熱伝導率の点では不利である。しかしながら、この発明において、焼成の前後または焼成中に還元処理がなされるならば、熱伝導率を向上させることが出来る。この還元処理でAlN粉末中の不純物酸素が減り、その分、熱伝導率が高まる。すなわち、不純物酸素を減じても、基本的には焼結体のグレインサイズに変化は余り生じないため、やはり、グレインサイズによる熱伝導率の減少の解消、つまり高熱伝導化には不利ではあるが、一方、焼結時にAlNグレイン内にAlN粒子表層の酸素が一部取り込まれてしまうことによるAlNグレインそのものの熱伝導率の低下は、還元処理による酸素量の低減により緩和される。そのため、グレインサイズは小さいながらも、高純度化により高熱伝導率が達成でき、効果的には、グレインサイズによる熱伝導率の減少の解消につながるのである。

【0014】上述の要点を簡単にまとめると以下のようになることとなる。この発明では、種々の問題の原因となるアルカリ土類化合物やフッ素系の焼結助剤を使わず、経済的な焼成コストを可能とする $1650^\circ\text{C}$ 以下の低温焼成で焼結させるために、原料として $12\text{ m}^2/\text{g}$ 以上の微粒子のAlN粉末と稀土類元素の含酸素化合物を用いる。その結果、焼結体中のグレインサイズはアルカリ土類化合物を使った場合の比較して小さくなるため、機械的強度の向上が図れる。また、熱伝導率に関しては還元

処理の採用によるAlN粉末の不純物酸素の還元で向上させることが可能となる。

【0015】焼結助剤として使う非フッ素系の稀土類化合物（稀土類元素の含酸素化合物）における稀土類元素としてはY, La, Dy, Er, Ce, Sm, Pm, Nd, Eu, Gd, Tb, Pr, Tm, Lu, Ho, Ydなどの酸化物、焼成で稀土類酸化物となる化合物としての炭酸化物、硝酸化物、水酸化物、しょう酸化物などの形態のものが挙げられる。焼結助剤の使用にあたっては、稀土類酸化物を複数種併用したり、焼成で稀土類酸化物となる化合物を複数種併用したり、稀土類酸化物と焼成で稀土類酸化物となる化合物を併用したりするようにしてもよい。焼結助剤の添加量に関しては、得られるAlN焼結体全体を100重量%とすると、そのうち焼結助剤が0.1~10重量%を占めるようになるようにする。

【0016】焼成は、 $1400^\circ\text{C}$ 程度から $1650^\circ\text{C}$ までの温度範囲で1~6時間程度の時間行うが、この焼成条件に限らない。還元処理は、焼成の前後または焼結のための焼成中のいずれでもよいが、焼結の進んでいない前が酸素が除去され易い。例えば、 $1650^\circ\text{C}$ で焼結を行う場合、 $1200^\circ\text{C}$ までを還元雰囲気とし、その後は中性雰囲気で焼結させるようにしてもよいし、全焼成中を還元雰囲気とし焼結処理と還元処理を同時に平行して殆ど同じ期間だけ行うようにしてもよい。還元処理に使える還元雰囲気としては、 $\text{H}_2$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{NH}_3$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{C}_2\text{H}_4$ ,  $\text{C}_2\text{H}_6$ ,  $\text{C}_3\text{H}_8$ 等の還元性ガス雰囲気が挙げられ、これらの還元性ガスを $\text{N}_2$ , Ar等の中性ガス雰囲気と組み合わせることで効果的な処理雰囲気を実現することができる。さらに、焼成炉がカーボンヒータやカーボン炉材を使用したカーボン炉である場合、蒸気相炭素による還元雰囲気の形成が容易である。

【0017】

【作用】この発明の場合、種々の問題を生じるアルカリ土類化合物やフッ素系の焼結助剤は使わずに、比表面積が $12.0\text{ m}^2/\text{g}$ 以上のAlN粉末に対して非フッ素系の稀土類化合物の焼結助剤だけを用い、 $1650^\circ\text{C}$ 以下の低温の焼成で焼結させられる。

【0018】焼結助剤としてアルカリ土類化合物やフッ素系のものを使わずにすむため、AlN焼結体の焼けムラ、反り、炉やセッターへの拡散による劣化が阻止される上、 $1650^\circ\text{C}$ 以下の低温の焼成であるため、焼成容器の長寿命化や低価格材料化が可能となるとともに消費電力の節約などのランニングコスト低減も可能となる。

【0019】また、得られるAlN焼結体中のグレインサイズが小さくなるため、機械的強度の向上が達成される。

【0020】焼成の前後または焼成中の還元処理を行う場合は、不純物酸素の除去などにより、高熱伝導率のAlN焼結体を得られるようになる。

## 【0021】

【実施例】以下、この発明の実施例を説明する。この発明は下記の実施例に限らない。

## －実施例1－

比表面積が $12.0\text{ m}^2/\text{g}$ のAlN粉末に、焼結助剤として、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ を3.0重量%添加し、湿式ボールミル場合、乾燥整粒の後、一軸プレスにより直径20mm、高さ5mmの円板状に成型したのち、 $1.5\text{ t/cm}^2$ の圧力でCIPを施し、円板状の成形体を得た。

【0022】続いて、この成形体をBN製ルツボ中に入れ、ルーズなBN製フタを被せて、カーボン炉中に収納し、4%の $\text{H}_2$ を含有した $\text{N}_2$ ガスを流しながら $1200^\circ\text{C}$ まで昇温した後、ガスを100% $\text{N}_2$ ガスに切替え $1650^\circ\text{C}$ に昇温して3時間保持し、AlN焼結体を得た。

## －実施例2－

焼結助剤として、 $\text{Y}(\text{NO}_3)_3$ を $\text{Y}_2\text{O}_3$ 換算で3重量%添加し、焼結温度を $1600^\circ\text{C}$ とした他は実施例1と同様にしてAlN焼結体を得た。

## 【0023】－実施例3－

比表面積が $15.0\text{ m}^2/\text{g}$ のAlN粉末に、焼結助剤として、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ を3.0重量%添加し、実施例1と同様にして円板状の成形体を得たのち、この成形体をアルミセッター中に入れ、アルミナ板でふたをして、カーボン炉中に収納し、4%の $\text{H}_2$ を含有した $\text{N}_2$ ガスを流しながら $1600^\circ\text{C}$ まで昇温して3時間保持し、AlN焼結体を得た。4%の $\text{H}_2$ を含有した $\text{N}_2$ ガスは全工程で使用した。

## 【0024】－実施例4－

焼結助剤として、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ を $\text{La}_2\text{O}_3$ に変えた他は、実施例3と同様にしてAlN焼結体を得た。

## －実施例5－

アルミセッターとアルミナ板の代わりに、実施例1のBN製ルツボとBN製フタを用い、全工程中、100% $\text{N}_2$ ガスを用いるようにした他は、実施例3と同様にしてAlN焼結体を得た。

## 【0025】－比較例1－

比表面積が $10.0\text{ m}^2/\text{g}$ のAlN粉末に、焼結助剤として、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ を3.0重量%添加し、実施例1と同様にして円板状の成形体を得たのち、この成形体をBN製ルツボ中に入れ、ルーズなBN製フタを被せて、カーボン炉中に収納し、100% $\text{N}_2$ ガスを流しながら、 $1650^\circ\text{C}$ に昇温して3時間保持し、AlN焼結体を得た。

## 【0026】－比較例2－

焼結助剤として、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ を3.0重量%および $\text{CaO}$ を0.5重量%添加した他は、比較例1と同様にしてAlN焼結体を得た。

## －比較例3－

AlN粉末として、比表面積が $3.0\text{ m}^2/\text{g}$ のAlN粉末を用いた他は、比較例2と同様にしてAlN焼結体を得た。

【0027】実施例および比較例における焼結条件の主なもの、実施例および比較例で得られた各AlN焼結体について測定した密度、グレインサイズ、熱伝導率および曲げ強度を、表1、表2に記す。

## 【0028】

## 【表1】

	焼結助剤の 種類と量 (重量%)	焼成温度 と時間 ℃, Hr	焼成時雰囲気	焼成用 の容器 の材質
実施例 1	$Y_2O_3$ 3 重量%	1650 3	~1200℃ $H_2 + N_2$ ※ 1200℃ ~ $N_2$	BN
実施例 2	$Y(NO_3)_3$ # 3 重量%	1600 3	~1200℃ $H_2 + N_2$ ※ 1200℃ ~ $N_2$	BN
実施例 3	$Y_2O_3$ 3 重量%	1600 3	$H_2 + N_2$ ※	$Al_2O_3$
実施例 4	$La_2O_3$ 3 重量%	1600 3	$H_2 + N_2$ ※	$Al_2O_3$
実施例 5	$Y_2O_3$ 3 重量%	1600 3	$N_2$	BN
比較例 1	$Y_2O_3$ 3 重量%	1650 3	$N_2$	BN
比較例 2	$Y_2O_3$ 3 重量% CaO 0.5 重量%	1650 3	$N_2$	BN
比較例 3	$Y_2O_3$ 3 重量% CaO 0.5 重量%	1650 3	$N_2$	BN

※  $H_2$  4% 含有の  $N_2$  ガス #  $Y_2O_3$  換算で 3 重量%

【0029】

【表2】

	密度 ( $\text{g/cm}^3$ )	熱伝導率 ( $\text{W/mK}$ )	曲げ強度 $\text{kgf/mm}^2$	平均グレイン サイズ	AlN粉末 の比表面積
実施例1	3.30	150	44	$0.9\mu\text{m}$	$12\text{ m}^2/\text{g}$
実施例2	3.29	143	46	$0.8\mu\text{m}$	$12\text{ m}^2/\text{g}$
実施例3	3.30	135	48	$0.7\mu\text{m}$	$15\text{ m}^2/\text{g}$
実施例4	3.33	130	47	$0.7\mu\text{m}$	$15\text{ m}^2/\text{g}$
実施例5	3.30	120	50	$0.7\mu\text{m}$	$15\text{ m}^2/\text{g}$
比較例1	2.87	100	25	$1.0\mu\text{m}$	$10\text{ m}^2/\text{g}$
比較例2	3.23	115	28	$1.4\mu\text{m}$	$10\text{ m}^2/\text{g}$
比較例3	3.10	108	23	$1.5\mu\text{m}$	$3\text{ m}^2/\text{g}$

【0030】表2にみるように、実施例のAlN焼結体は、アルカリ土類系やフッ素系の焼結助剤を使わずとも、十分に緻密化しており、又、高い熱伝導率の曲げ強度を兼ね備えているが、比較例のAlN焼結体は、これらの特性を兼ね備えてはいなかった。

【0031】

【発明の効果】この発明にかかるAlN焼結体の製造方法では、 $1650^\circ\text{C}$ 以下の低温焼成であるため、焼成治具容器の長寿命化および低価格材容器の使用が可能とな

るとともに消費電力の節約などによるランニングコストの低減も可能となる上、アルカリ土類系やフッ素系の焼結助剤を使わずにすむため、焼けムラ、反り、炉やセッターへの拡散による劣化が防げるだけでなく、グレインサイズが小さくなり、機械的強度に優れたAlN焼結体が安価に得られ、加えて還元処理が施される場合にはAlN焼結体の熱伝導率の向上も可能となり、したがって、この発明は実用的であって非常に有用である。

フロントページの続き

(72)発明者 田中 恭史

大阪府門真市大字門真1048番地松下電工株式会社内

## \* NOTICES \*

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

## DETAILED DESCRIPTION

## [Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Industrial Application] This invention relates to the manufacture method of an alumimium nitride sintered compact.

[0002]

[Description of the Prior Art] High integration of a semiconductor device and formation of large power which are represented by IC etc. progress, and the good electrical insulation material of heat dissipation nature came to be required in connection with this. Also in it, from the insulating substrate which consists of an alumimium nitride sintered compact especially being excellent in respect of thermal conductivity, thermal-expansion nature, electric insulation, etc., it is observed and utilization is also progressing.

[0003] However, since an alumimium nitride sintered compact needed elevated-temperature baking of 1750 degrees C or more by the difficulty degree of sintering while the alumimium nitride powder of a raw material is expensive, it became very expensive. For this reason, the manufacture method of an alumimium nitride sintered compact of lowering burning temperature and planning cost reduction is proposed. Using together the fluoride of a rare earth element, an oxide and the fluoride of an alkaline-earth element, or an oxide as a sintering acid to alumimium nitride powder is proposed (JP,61-209959,A, USP4,746,637 number specification). Here, it is supposed that it is precise at low-temperature baking of 1550-1700 degrees C, and the alumimium nitride sintered compact of high temperature conductivity will be obtained. However, in the case of the above-mentioned method, there are the following problems.

[0004] If a fluoride is used for a sintering acid, the fluorine element produced in decomposition of a sintering acid at the time of baking becomes corrosive and toxic gas, such as HF, simply, and since problems, such as damage on the bad influence to an operator's health, a firing furnace, etc., arise, it cannot be said that it is practical. Although the fall of liquid phase formation temperature is accepted, therefore sintering of it at low temperature is attained compared with the case of independent use of a rare earth compound, since it becomes simultaneously remarkable grain growing up combined use of the rare earth compound as a sintering acid and an alkaline earth compound according to liquid phase formation, even when it is advantageous to the formation of high temperature conductivity, it becomes disadvantageous in respect of a mechanical strength. moreover, the case of an alkaline earth -- under baking -- diffusion -- happening -- easy -- sintering -- it is easy to produce an uneven distribution in a body, and the problem of degradation by the adhesion reaction to the setter who is the burning nonuniformity, firing furnace, and fixture of an alumimium nitride sintered compact etc. is produced In addition, in order that the above-mentioned liquid phase may form a thick grain-boundary layer and may surround a grain, destructive mode serves as an intergranular fracture. Generally mechanical strength will fall compared with a rare earth compound independent case. a rare earth compound -- Y2 O3 if the case of being independent is taken for an example -- 1760 degrees C -- aluminum 2O3 between -- the liquid phase -- forming -- this liquid phase -- the grain of alumimium nitride -- soaking -- although

carried-out, it is easy to gather for the triple point of a grain boundary, without forming a grain-boundary layer, and a grain-boundary layer becomes very thin, consequently destructive mode tends to serve as a transgranular fracture instead of an intergranular fracture. Generally as for a mechanical strength, the direction of a transgranular fracture becomes high compared with an intergranular fracture.

[0005]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] This invention makes it a technical problem to offer the practical method of obtaining cheaply the alumimium nitride sintered compact excellent in thermal conductivity and the mechanical strength in view of the above-mentioned situation.

[0006]

[Means for Solving the Problem] In order to solve the aforementioned technical problem, the manufacture method of the alumimium nitride sintered compact concerning this invention In making the Plastic solid which adds and comes to cast a sintering acid to alumimium nitride powder sinter by calcinating by the non-oxidizing atmosphere In the manufacture method of an alumimium nitride sintered compact of making the Plastic solid which adds and comes to cast a sintering acid to alumimium nitride powder sintering by calcinating by the non-oxidizing atmosphere The specific surface area of the aforementioned alumimium nitride powder is more than  $12.0\text{m}^2/\text{g}$ , and the aforementioned sintering acid is a rare earth compound containing the oxygen of a non-fluoride system, and is made to perform baking by the aforementioned non-oxidizing atmosphere at the temperature of 1650 degrees C or less.

[0007] In this invention, the gestalt which is made to perform reduction processing before and after baking or during baking is effective when the thermal conductivity of the alumimium nitride sintered compact (henceforth a "AlN sintered compact") obtained raises so that it may state in detail below, and it can be called useful gestalt. In this invention, specific surface area the reason using the alumimium nitride powder (henceforth "AlN powder") of the minute particle size  $12.0\text{m}^2/\text{more than g}$  The rare earth compound containing the oxygen of a non-fluoride system (oxygenated compound of a rare earth element), That is, it is because it comes to be made to sinter by low-temperature baking of 1650 degrees C or less by the basis of use of only the compound in the range of a rare earth compound group which consists of a rare earth oxide and a compound of a non-fluoride system which turns into a rare earth oxide by baking.

[0008] Although specific surface area can also sinter the AlN powder of under  $12.0\text{m}^2/\text{g}$  if the fluoride of a rare earth element, an oxide and the fluoride of an alkaline-earth element, or an oxide is used together as mentioned above, problems by grain growth etc., such as a fall of a mechanical strength, burning nonuniformity of an AlN sintered compact, a firing furnace, and a setter's degradation, are produced. This invention does not take a combined use gestalt, but can cancel now un-arranging [ of the above-mentioned combined use which comes to be made to also sinter \*\* by low-temperature baking ].

[0009] Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> which is the oxygenated compound of a typical rare earth element It is Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> when it takes for an example. aluminum 2O<sub>3</sub> of an AlN powder front face It is 1760 degrees C or more to form a eutectic melt, and in order to perform liquid phase sintering, it is necessary to calcinate at the temperature beyond this. According to examination of artificers, the coarse AlN powder whose specific surface area is  $3.0\text{m}^2/\text{g}$  grade is used, and it is Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. If you are going to make it sinter independently, above-mentioned liquid phase sintering will be indispensable, and it will become indispensable elevated-temperature calcinating [ of 1760 degrees C or more ] it. Then, artificers continued examination, and if specific surface area was the fine AlN powder  $12.0\text{m}^2/\text{more than g}$ , not liquid phase sintering but solid phase sintering was possible for them, and they found out what can aim at reduction of burning temperature. Although the burning temperature which exceeds 1700 degrees C was required when specific surface area was the AlN powder of under  $12.0\text{m}^2/\text{g}$ , when specific surface area was the AlN powder  $12.0\text{m}^2/\text{more than g}$ , it found out that it could sinter with the burning temperature of 1650 degrees C or less only by the sintering acid of a non-fluoride system rare earth compound.

[0010] When sintering becomes possible by baking of 1650 degrees C or less, there is a merit reflected in reduction of baking cost. It is mentioned that the life of expensive BN container currently used as a baking container is specifically extended sharply, and it is mentioned also with a bird clapper that use of

a cheap alumina system container is possible instead of still more expensive BN container. By baking exceeding 1650 degrees C, since deformation by the elevated-temperature creep becomes remarkable, a cheap alumina system container cannot be used, if it is the former. Furthermore, a cost cut can be aimed at also in respect of the running cost of a firing furnace by saving of power consumption etc.

[0011] Then, the thermal conductivity and mechanical strength of an AlN sintered compact which are obtained by this invention are described. Since specific surface area sinters with the burning temperature of 1650 degrees C or less only by the sintering acid of a non-fluoride system rare earth compound using the detailed-less AlN powder 12.0m<sup>2</sup> / more than g in this invention as seen in the top, it is thought that the sintering mechanism is not liquid phase sintering but solid phase sintering. So, the grain size of an AlN sintered compact is small compared with the case where the alkaline earth compound which forms at least 1650 degrees C or less of liquid phase is used as a sintering acid, consequently a mechanical strength becomes large. However, the grain size of an AlN sintered compact is small, and thermal conductivity usually tends to become small by the bird clapper. The heat-conduction mechanism in an AlN sintered compact is phonon conduction, and this phonon conduction tends to cause dispersion in a grain-boundary portion, in the case of an AlN sintered compact with small grain size, there are many grain-boundary portions, consequently this phonon dispersion is also large, and it is because heat conduction is barred.

[0012] Moreover, that the specific surface area of AlN powder generally becomes larger (particle size becomes fine) increases the impurity oxygen in the AlN powder leading to a thermal conductivity fall. Impurity oxygen is because it exists in the surface of AlN powder. Therefore, in this invention using the AlN powder 12.0m<sup>2</sup> / more than g with a detailed specific surface area, the amount of impurity oxygen increases compared with the case where AlN powder with a big particle size is used inevitably.

[0013] Thus, the AlN sintered compact obtained by this invention is disadvantageous in respect of thermal conductivity because there is [ that grain size is small and ] much impurity oxygen in the AlN powder of a raw material. However, in this invention, if reduction processing is made before and behind baking or during baking, thermal conductivity can be raised. The impurity oxygen in AlN powder decreases by this reduction processing, and the part and thermal conductivity increase. However, since change is hardly produced in the grain size in a sintered compact in this reduction processing, although the dissolution of reduction of the thermal conductivity by grain size seems to be unable to wish at all, since a part of oxygen of the surface of AlN powder is incorporated by reduction of the amount of oxygen in the grain of aluminium nitride at the time of sintering and the thermal conductivity of the grain itself is improved by this, a fixed grade can also desire a dissolution of reduction of the thermal conductivity by grain size. Thus, when also performing reduction processing, grain size can attain high temperature conductivity-ization by high grade-ization, though it is small.

[0014] It will become the following if the above-mentioned main point is summarized simply. In this invention, the sintering acid of the alkaline earth compound leading to the various problems or a fluorine system is not used, but in order to make it sinter by low-temperature baking of 1650 degrees C or less which makes economical baking cost possible, the AlN powder of the particle 12m<sup>2</sup> / more than g and the oxygenated compound of a rare earth element are used as a raw material. Consequently, since the grain size in a sintered compact becomes small as compared with the case where an alkaline earth compound is used, improvement in a mechanical strength can be aimed at. Moreover, it becomes possible to make it improve by reduction of the impurity oxygen of the AlN powder by adoption of reduction processing about thermal conductivity.

[0015] As a rare earth element in the rare earth compound (oxygenated compound of a rare earth element) of the non-fluorine system used as a sintering acid, the thing of gestalten, such as oxides, such as Y, La, Dy, Er, Ce, Sm, Pm, NdEu, and Gd, Tb, Pr, Tm, Lu, Ho, Yb, a carbonation object as a compound which turns into a rare earth oxide by baking, a nitric-acid ghost and a hydroxide, and an oxalic acid ghost, is mentioned. Two or more sorts of rare earth oxides may be used together, two or more sorts of compounds which turn into a rare earth oxide by baking may be used together, or you may make it use together the compound which turns into a rare earth oxide by the rare earth oxide and baking in use of a sintering acid. If the whole AlN sintered compact obtained is made into 100 % of the weight



about the addition of a sintering acid, a sintering acid will come to occupy 0.1 - 10 % of the weight. [0016] Although baking is performed about 1 - 6 hours by the temperature requirement from about 1400 to 1650 degrees C, it does not restrict to this baking condition. Although any under baking for sintering before and after baking are sufficient as reduction processing, oxygen is easy to be removed before sintering is not progressing. For example, when sintering at 1650 degrees C, even 1200 degrees C is made into reducing atmosphere, you may make it make it sinter by neutral atmosphere after that, and under [ all ] baking are made into reducing atmosphere, it is simultaneously parallel and only the almost same period may be made to perform sintering processing and reduction processing. the reducing atmosphere which can be used for reduction processing -- carrying out --  $H_2$ , CO,  $NH_3$ ,  $CH_4$ , and C -- two  $H_4$ ,  $C_2H_6$ , and  $C_3H_8$  etc. -- reducing gas atmosphere is mentioned and effective processing atmosphere can be realized by combining these reducing gas with inert-gas atmosphere, such as  $N_2$  and Ar Furthermore, when a firing furnace is a carbon furnace which used a carbon heater and carbon internal insulation, formation of the reducing atmosphere by steamy phase carbon is easy.

[0017]

[Function] Specific surface area is made to sinter the sintering acid of the alkaline earth compound which produces various problems, or a fluorine system by baking of low temperature 1650 degrees C or less only using the sintering acid of the rare earth compound of a non-fluorine system to the AlN powder of under  $12.0m^2 / g$  in this invention, without using.

[0018] Since it is not necessary to use the thing of an alkaline earth compound or a fluorine system as a sintering acid, when degradation by the diffusion to the burning nonuniformity, the curvature, furnace, and setter of an AlN sintered compact is prevented, since it is baking of low temperature 1650 degrees C or less, while the reinforcement of a baking container and low-price material-ization are attained, running cost reduction of saving of power consumption etc. is also attained.

[0019] moreover, AlN sintering obtained -- since grain size in the living body becomes small, improvement in a mechanical strength is attained When prevented, since it is baking of low temperature 1650 degrees C or less, while the reinforcement of the container for sintering and low-price material-ization are attained, running cost reduction of saving of power consumption etc. is also attained.

[0020] When performing reduction processing before and after baking or under baking, the AlN sintered compact of high temperature conductivity can be obtained by removal of impurity oxygen etc.

[0021]

[Example] Hereafter, the example of this invention is explained. This invention is not restricted to the following example.

- Example 1-specific surface area makes it the AlN powder of  $12.0m^2 / g$  as a sintering acid, and it is  $Y_2O_3$ .  $1.5 \text{ ton}/cm^2$  after adding 3.0% of the weight and casting to disc-like [ with a diameter / of 20mm / , and a height of 10mm ] with a 1 shaft press after wet ball mill mixture and a dryness particle size regulation CIP was given by the pressure and the disc-like Plastic solid was obtained.

[0022] Then, this Plastic solid is put in into the crucible made from BN, the loose free wheel plate made from BN is put, and it contains all over a carbon furnace, and is 4% of  $H_2$ .  $N_2$  contained It is gas after carrying out a temperature up to 1200 degrees C, passing gas 100%  $N_2$  It changed to gas, and the temperature up was carried out to 1650 degrees C, it held for 3 hours, and the AlN sintered compact was obtained.

- Carry out as an example 2-sintering acid, and it is  $Y_2O_3$ .  $Y(NO_3)_3$  Changed, and sintering temperature was made into 1600 degrees C, and also the AlN sintered compact was obtained like the example 1.

[0023] - Example 3-specific surface area is a sintering acid to the AlN powder of  $15.0m^2 / g$ . It carries out and is  $Y_2O_3$ . After adding 3.0% of the weight and obtaining a disc-like Plastic solid like an example 1, this Plastic solid is put in into an alumina setter, and it covers with an alumina board, and it contains all over a carbon furnace, and is 4% of  $H_2$ .  $N_2$  contained The temperature up was carried out to 1600 degrees C, it held for 3 hours, passing gas, and the AlN sintered compact was obtained. 4% of  $H_2$   $N_2$  contained Gas was used at all processes.

[0024] - Carry out as an example 4-sintering acid, and it is  $Y_2O_3$ .  $La_2O_3$  It changed and also the AlN

sintered compact was obtained like the example 3.

- Instead of an example 5-alumina setter and an alumina board, use the crucible made from BN and the free wheel plate made from BN of an example 1, and they are full-in process and 100%N<sub>2</sub>. Gas was used and also the AlN sintered compact was obtained like the example 3.

[0025] - Example of comparison 1-specific surface area is a sintering acid to the AlN powder of 10.0m<sup>2</sup> / g. It carries out and is Y<sub>2</sub> O<sub>3</sub>. After adding 3.0% of the weight and obtaining a disc-like Plastic solid like an example 1, this Plastic solid is put in into the crucible made from BN, and the loose free wheel plate made from BN is put, and it contains all over a carbon furnace, and is N<sub>2</sub> 100%. Passing gas, the temperature up was carried out to 1650 degrees C, it held for 3 hours, and the AlN sintered compact was obtained.

[0026] - Carry out as an example of comparison 2-sintering acid, and it is Y<sub>2</sub> O<sub>3</sub>. 3.0 % of the weight and CaO were added 0.5% of the weight, and also the AlN sintered compact was obtained like the example 1 of comparison.

- As example of comparison 3-AlN powder, specific surface area used the AlN powder of 3.0m<sup>2</sup> / g, and also the AlN sintered compact was obtained like the example 2 of comparison.

[0027] The density measured about each AlN sintered compact obtained in the main things, the example, and the example of comparison of the baking conditions in an example and the example of comparison, grain size, thermal conductivity, and flexural strength are described in Table 1 and Table 2.

[0028]

[Table 1]

	焼結助剤の 種類と量 (重量%)	焼成温度 と時間 ℃, H r	焼成時雰囲気	焼成用 の容器 の材質
実施例 1	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 3 重量%	1 6 5 0 3	~1200℃ H <sub>2</sub> + N <sub>2</sub> ※ 1200℃ ~ N <sub>2</sub>	BN
実施例 2	Y(NO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> 3 重量%	1 6 0 0 3	~1200℃ H <sub>2</sub> + N <sub>2</sub> ※ 1200℃ ~ N <sub>2</sub>	BN
実施例 3	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 3 重量%	1 6 0 0 3	H <sub>2</sub> + N <sub>2</sub> ※	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
実施例 4	La <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 3 重量%	1 6 0 0 3	H <sub>2</sub> + N <sub>2</sub> ※	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
実施例 5	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 3 重量%	1 6 0 0 3	N <sub>2</sub>	BN
比較例 1	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 3 重量%	1 6 5 0 3	N <sub>2</sub>	BN
比較例 2	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 3 重量% CaO 0.5 重量%	1 6 5 0 3	N <sub>2</sub>	BN
比較例 3	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 3 重量% CaO 0.5 重量%	1 6 5 0 3	N <sub>2</sub>	BN

※ H<sub>2</sub> 4%含有のN<sub>2</sub> ガス

[0029]

[Table 2]

	密度 (g/cm <sup>3</sup> )	熱伝導率 (W/mK)	曲げ強度 kgf/mm <sup>2</sup>	平均グレインサイズ	AlN粉末 の非表面積
実施例 1	3. 3 0	1 5 0	4 4	0. 9 $\mu$ m	1 2 m <sup>2</sup> /g
実施例 2	3. 2 9	1 4 3	4 6	0. 8 $\mu$ m	1 2 m <sup>2</sup> /g
実施例 3	3. 3 0	1 3 5	4 8	0. 7 $\mu$ m	1 5 m <sup>2</sup> /g
実施例 4	3. 3 3	1 3 0	4 7	0. 7 $\mu$ m	1 5 m <sup>2</sup> /g
実施例 5	3. 3 0	1 2 0	5 0	0. 7 $\mu$ m	1 5 m <sup>2</sup> /g
比較例 1	2. 8 7	1 0 0	2 5	1. 0 $\mu$ m	1 0 m <sup>2</sup> /g
比較例 2	3. 2 3	1 1 5	2 8	1. 4 $\mu$ m	1 0 m <sup>2</sup> /g
比較例 3	3. 1 0	1 0 8	2 3	1. 5 $\mu$ m	3 m <sup>2</sup> /g

grain size

[0030] Although \*\* has also fully turned precisely without using the sintering acid of an alkaline-earth system or a fluorine system and the AlN sintered compact of an example had high thermal conductivity and high flexural strength so that it might see to Table 2, the AlN sintered compact of the example of comparison did not have these properties.

[0031]

[Effect of the Invention] By the manufacture method of the AlN sintered compact concerning this invention When reduction of the running cost by saving of power consumption etc. is also attained while becoming usable [ the reinforcement of the container for burning tools, and a low-price material container ] since it is low-temperature baking of 1650 degrees C or less, Since it is not necessary to use the sintering acid of an alkaline-earth system or a fluorine system, burning nonuniformity, It not only can prevent degradation by the diffusion to curvature, a furnace, or a setter, but grain size becomes small. The AlN sintered compact excellent in the mechanical strength is obtained cheaply, when reduction processing is performed in addition, improvement in the thermal conductivity of an AlN sintered compact is also attained, therefore this invention is practical and very useful.

[Translation done.]